

(C) WPI / DERWENT

AN - 2001-084839 [10]

AP - JP19990131245 19990512

CPY - NIRA

DC - A23 A92 Q34

FS - CPI;GMPI

IC - B29C55/12 ; B29K67/00 ; B29L7/00 ; B65D65/40 ; C08J5/18 ; C08L67/02

MC - A05-E04E A05-E09 A11-C01A A12-P01A

PA - (NIRA ) UNITIKA LTD

PN - JP2000319417 A 20001121 DW200110 C08J5/18 005pp

PR - JP19990131245 19990512

XA - C2001-025316

XIC - B29C-055/12 ; B29K-067/00 ; B29L-007/00 ; B65D-065/40 ; C08J-005/18 ;  
C08L-067/02

XP - N2001-064855

AB - JP2000319417 NOVELTY - Biaxial oriented polyester film contains polyethylene terephthalate (PET) and modified polybutylene terephthalate (PBT) in the weight ratio of 70/30-95/5. The modified PBT contains 5-20 weight percent of polytetra methylene glycol units of molecular weight 600-4000. The heat of fusion  $\Delta H_c$  (J/g) of the film and modified content X (weight percent) of PBT, are such that  $X^2$  divided by 200 at most  $\Delta H_c$  at most  $X^2$  divided by 40.

- DETAILED DESCRIPTION - Biaxial oriented polyester film contains PET and modified PBT in the weight ratio of 70/30-95/5. The modified PBT contains 5-20 weight percent of polytetra methylene glycol units of molecular weight 600-4000. The heat of fusion  $\Delta H_c$  (J/g) of the film and modified content X (weight percent) of PBT, are such that  $X^2$  divided by 200 at most  $\Delta H_c$  at most  $X^2$  divided by 40. The unstretched film is obtained by melt extruding the raw material containing PET and PBT, in the form of a sheet.

- USE - As packing material for drugs, cosmetics, foodstuffs such as confectionary, pickles, bean paste, soup, jam, frozen foods, and as retort pouch.

- ADVANTAGE - The film has excellent strength, heat resistance, dimensional stability and tear linearity along longitudinal direction at the time of tearing, so that the packing material can be opened easily.

- (Dwg.0/0)

IW - BIAxIAL ORIENT POLYESTER FILM PACK MATERIAL DRUG COSMETIC FOOD  
SPECIFIC HEAT FUSE MODIFIED POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE CONTENT

IKW - BIAxIAL ORIENT POLYESTER FILM PACK MATERIAL DRUG COSMETIC FOOD  
SPECIFIC HEAT FUSE MODIFIED POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE CONTENT

NC - 001

OPD - 1999-05-12

ORD - 2000-11-21

PAW - (NIRA ) UNITIKA LTD

TI - Biaxial oriented polyester film for use as packing material for drugs, cosmetics, foodstuffs, has specific heat of fusion and modified polybutylene terephthalate content

A01 - [001] 018 ; S9999 S1285-R ; P0884 P1978 P0839 H0293 F41 D01 D11 D10  
D19 D18 D31 D50 D63 D90 E21 E00 ; S9999 S1387

- [002] 018 ; H0044-R H0011 ; H0260 ; P0953 P0839 P0964 H0260 F34 F41  
D01 D63 ; S9999 S1285-R ; S9999 S1387 ; P0895 P1978 P0839 H0293 F41  
D01 D11 D10 D19 D18 D31 D50 D63 D92 E21 E00 ; P8048 P8026 P0975 P0964  
D01 D10 D11 D50 D84 F34

- [003] 018 ; ND01 ; K9745-R ; N9999 N6439 ; N9999 N5970-R ; N9999  
N5925 N5914 ; N9999 N6202 N6177 ; Q9999 Q8413 Q8399 Q8366 ; Q9999  
Q7589-R ; B9999 B5163 B5152 B4740 ; B9999 B5243-R B4740 ; N9999

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-319417

(P2000-319417A)

(43) 公開日 平成12年11月21日 (2000. 11. 21)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 8 J 5/18	CFD	C 0 8 J 5/18	CFD 3 E 0 8 6
B 2 9 C 55/12		B 2 9 C 55/12	4 F 0 7 1
B 6 5 D 65/40		B 6 5 D 65/40	D 4 F 2 1 0
C 0 8 L 67/02		C 0 8 L 67/02	4 J 0 0 2
// B 2 9 K 67:00			

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平11-131245

(22) 出願日 平成11年5月12日 (1999. 5. 12)

(71) 出願人 000004503

ユニチカ株式会社

兵庫県尼崎市東本町1丁目50番地

(72) 発明者 岸田 稔

京都府宇治市宇治樋ノ尻31-3 ユニチカ  
株式会社宇治プラスチック工場内

(72) 発明者 川口 和浩

京都府宇治市宇治樋ノ尻31-3 ユニチカ  
株式会社宇治プラスチック工場内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 二軸配向ポリエステルフィルム

(57) 【要約】

【課題】 フィルムの少なくとも長手方向に引裂いた際の引裂直線性に優れた、易開封性包装材料として好適な二軸配向ポリエステルフィルムを提供する。

【解決手段】 分子量600~4000のポリテトラメチレングリコール単位5~20重量%を含有したポリブチレンテレフタレート (変性PBT) と、ポリエチレンテレフタレート (PET) とを、PET/変性PBT=70/30~95/5 (重量比) の割合で混合した原料を用いてシート状に溶融押出して得られた未延伸フィルムを、縦および横方向に延伸した二軸延伸フィルムであって、未延伸フィルム中の変性PBTの融解熱量 $\Delta H_c$  (J/g) と変性PBTの含有量X (重量%) との関係が、 $X^2/200 \leq \Delta H_c \leq X^2/40$ を満たす。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 分子量600～4000のポリテトラメチレングリコール単位5～20重量%を含有したポリブチレンテレフタレート（変性PBT）と、ポリエチレンテレフタレート（PET）とを、PET/変性PBT=70/30～95/5（重量比）の割合で混合した原料を用いてシート状に熔融押出して得られた未延伸フィルムを、縦および横方向に延伸した二軸延伸フィルムであって、未延伸フィルム中の変性PBTの融解熱量 $\Delta H_c$ （J/g）と変性PBTの含有量X（重量%）との関係が、 $X^2/200 \leq \Delta H_c \leq X^2/40$ を満たすことを特徴とする、少なくともフィルムの長手方向に引裂直線性を有する二軸配向ポリエステルフィルム。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、フィルムの少なくとも長手方向の引裂直線性に優れ、かつ、優れた強度、耐熱性、寸法安定性を有し、菓子、漬物、味噌、スープ、ジャム、冷凍、冷蔵、レトルトパウチなどの食品をはじめ、医薬品、日用品、コスメティックスなどの包装材料として有用な易引裂性ポリエステルフィルムに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】食品、医薬品、雑貨の包装には、各種のプラスチックフィルムを用いた包装袋が多く使用されており、その中でも二軸延伸されたPETフィルムは、耐久性、防湿性、力学的強度、耐熱性、耐油性に優れており、ヒートシール可能なシーラントフィルム等と2層以上ラミネートした包装袋が広く使用されている。

【0003】しかしながら、PETフィルムは引裂性が悪いいため、シーラントフィルム等を積層した包装袋は引裂開封性が悪いという問題を有している。開封性を良くするためにノッチを付与する方法があるが、ノッチから引き裂いた際に直線的に引き裂けない現象がしばしば発生し、内容物が飛散して無駄になるばかりでなく、クッキーなどの軟らかい菓子は、開封時に割れたり、内容物が液体の場合には衣服を汚したりするトラブルが起こる場合がある。

【0004】フィルムを引き裂いた際に直線性に優れる易開封性材料としては、一軸延伸ポリオレフィンフィルムを中間層としてラミネートしたものがある。このようなものとしては、たとえば、二軸延伸ポリエステルフィルム/一軸延伸ポリオレフィンフィルム/無延伸ポリオレフィンフィルムの3層ラミネートフィルムがあるが、わざわざ中間層を設けなければならずコスト的に問題があり、用途が限定されていた。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、このような問題点を解決しようとするものであり、フィルムの少なくとも長手方向の引裂直線性に優れ、かつ、優れた強

度、耐熱性、寸法安定性を有する、包装材料として有用な易引裂性ポリエステルフィルムを提供しようとするものである。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、このような課題を解決するために鋭意検討した結果、PETに特定のポリエステル樹脂（変性PBT）を特定量配合し、シート状に熔融押出して得られた未延伸フィルムを、縦および横方向に延伸した二軸延伸フィルムにおいて、未延伸フィルムの熱特性を調整することにより、上記の課題が解決されることを見出し本発明に到達した。

【0007】すなわち、本発明の要旨は、次の通りである。分子量600～4000のポリテトラメチレングリコール単位5～20重量%を含有したポリブチレンテレフタレート（変性PBT）と、ポリエチレンテレフタレート（PET）とを、PET/変性PBT=70/30～95/5（重量比）の割合で混合した原料を用いてシート状に熔融押出して得られた未延伸フィルムを、縦および横方向に延伸した二軸延伸フィルムであって、未延伸フィルム中の変性PBTの融解熱量 $\Delta H_c$ （J/g）と変性PBTの含有量X（重量%）との関係が、 $X^2/200 \leq \Delta H_c \leq X^2/40$ を満たすことを特徴とする、少なくともフィルムの長手方向に引裂直線性を有する二軸配向ポリエステルフィルム。

## 【0008】

【発明の実施の形態】本発明におけるPETは、公知の製法、すなわち、テレフタル酸ジメチルとエチレングリコールとからのエステル交換反応法、あるいは、テレフタル酸とエチレングリコールとからの直接エステル化法によりオリゴマーを得た後、熔融重合、あるいはさらに固相重合して得られるが、本発明の効果を損ねない範囲であれば他の成分を共重合することができる。

【0009】他の共重合成分としては、シュウ酸、イソフタル酸、フタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、ダイマー酸、無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、シクロヘキサジカルボン酸などのジカルボン酸、4-ヒドロキシ安息香酸、ε-カプロラクトン、乳酸などのオキシカルボン酸、1,3-プロパンジオール、1,4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサジオール、シクロヘキサジメタノール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどのグリコール、ビスフェノールAやビスフェノールSなどのエチレンオキシド付加体、トリメリット酸、トリメシン酸、ピロメリット酸、トリメチロールプロパン、グリセリン、ペンタエリスリトールなどの多官能化合物が挙げられる。

【0010】本発明において用いられるポリテトラメチレングリコール (PTMG) の分子量は、600~4000、好ましくは1000~3000、さらに好ましくは1000~2000である。PTMGの分子量が、600未満の場合には引裂直線性が得られず、4000を超える場合にはフィルムの機械的強度、寸法安定性、ヘーズなどの性能が低下し、また、安定した引裂直線性が得られない。

【0011】本発明において、変性PBTを構成するPBTとPTMGの比率は、 $PBT/PTMG=80/20\sim95/5$  (重量比)、好ましくは $80/20\sim90/10$ 、さらに好ましくは $85/15\sim90/10$ である。PTMGが5重量%未満の場合、PETとの親和性が良すぎるためにフィルムの引裂直線性が低下し、また20重量%を超える場合には、得られるフィルムの機械的強度、寸法安定性、ヘーズなどの性能が低下するばかりか、製膜加工性が悪化して、厚み斑が増大し、結果的に引裂直線性が悪くなる。また、変性PBT中のPTMGの比率が上記の範囲をはずれる場合には、PETと変性PBTの相溶性の関係から、押出時にフィルムが脈動する現象 (いわゆるバラス現象) が発生することがある。本発明における変性PBTは、PBTの重合工程においてPTMGを添加して重縮合して得ることができるが、より簡便な方法としては、PBTとPTMGを押出機で熔融混練することによっても得ることができる。

【0012】本発明における、PETと変性PBTの混合割合は、 $PET/変性PBT=70/30\sim95/5$  (重量比)、好ましくは $80/20\sim90/10$ 、さらに好ましくは $85/15\sim90/10$ とすることが必要である。変性PBTの濃度が5重量%未満の場合にはフィルムの引裂直線性が得られず、30重量%を超える場合には、機械的強度、寸法安定性、ヘーズなどの性能が低下して実用性能に問題が生じたり、厚み斑が大きくなり引裂直線性が低下する。

【0013】本発明における未延伸フィルム中の変性PBTの融解熱量 $\Delta H_c$  (J/g) は、未延伸フィルムをDSC測定し、変性PBTの融解に基づく吸熱ピークを積分計算することにより求められ、その値と変性PBTの含有量 $X$  (重量%) が、 $X^2/200 \leq \Delta H_c \leq X^2/40$  の関係を満たすことが必要である。上記の関係を満たさない場合には、フィルムの引裂直線性が低下する。 $\Delta H$  が $X^2/200$  より小さくなる場合は、押出製膜温度が高すぎたり、滞留時間が長い場合になりやすく、 $\Delta H$  が $X^2/40$  より大きくなる場合は、押出製膜工程における混練が不十分であったり、押出温度が低すぎる場合に発生する傾向がある。

【0014】滞留時間は、樹脂が押出機、単管を経て、ダイから溶融して押し出されるまでの時間をいう。滞留時間は、押出機の回転数、スクリュウの形状、単管およびダイスの容量、押出圧力などの条件が変わると変化する。

る。

【0015】本発明のフィルムには、本発明の効果を損ねない範囲で他の熱可塑性樹脂、例えばポリエチレナフタレート、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレートなどを混合することができる。また、紫外線吸収剤、酸化防止剤、帯電防止剤、界面活性剤、顔料、蛍光増白剤等や、シリカ、炭酸カルシウム、酸化チタン等の無機粒子、アクリル酸、スチレンなどを構成成分とする有機粒子も必要に応じて適宜含有してもよい。

【0016】本発明のポリエステルフィルムを製造するには、たとえば、変性PBTとPETのチップを混合したものを押出機に投入し、加熱溶融した後、Tダイのダイオリフィスからシート状に押し出し、未延伸シートを製造する。Tダイのダイオリフィスから押し出されたシートは、静電印加キャスト法などにより冷却ドラムに密着して巻きつけて冷却し、次に、温度90~140℃で、縦および横方向にそれぞれ2.5~5.0倍の倍率で延伸し、さらに温度210~245℃で熱処理し、二軸延伸フィルムとする。

【0017】延伸温度が90℃未満の場合には、均質な延伸フィルムを得ることができない場合があり、140℃を超えると、PETの結晶化が促進されて、透明性が悪くなる場合がある。延伸倍率が2.5倍未満の場合には、得られる延伸フィルムの強度が低く、袋にしたときにピンホールが発生しやすくなり、延伸倍率が5.0倍を超えると延伸が困難となる場合がある。また、熱処理温度が210℃より低いと、得られる延伸フィルムの熱収縮率が大きくなり、製袋後の袋が変形する場合があり、また、熱処理温度が245℃より高いとフィルムが溶断する場合がある。

【0018】二軸延伸方法としては、テンター同時二軸延伸法、ロールとテンターによる逐次二軸延伸法のいずれでもよい。また、チューブラー法で二軸延伸フィルムを製造してもよい。

【0019】本発明の二軸延伸フィルムには、コロナ放電処理、表面硬化処理、メッキ処理、着色処理、あるいは各種のコーティング処理による表面処理を付与することができる。

【0020】次に、本発明を実施例によって具体的に説明する。なお、実施例及び比較例の評価に用いた測定方法は、次のとおりである。

【0021】引裂直線性；幅方向中央部の延伸フィルムより、長手方向 (MD方向) に205mm、幅方向 (TD方向) に20mmの短冊状のフィルム片を切り出し、このフィルム片の一方の短辺の中央部に長さ5mmの切込みを入れた試料を10本作製する。次に、切込みよりMD方向に手で引き裂き、引裂伝播端が切込みを入れた辺に向かい合う短辺に到達した試料本数が8本以上のものを○、7~5本を△、4本以下を×と評価した。

【0022】融解熱量；パーキンエルマー社製示差走査

熱分析装置を用い、サンプル10mgについて、昇温速度20℃/min、測定範囲20～280℃でDSC測定を行った。PETの融解ピーク(240～260℃)より低温側の変性PBTの融解ピーク(200～220℃)から積分計算し、変性PBTの融解熱量を求めた。

#### 【0023】実施例1

ジメチルテレフタレート194部、1,4-ブタンジオール108部、及びテトラブチルチタネート80ppm(ポリマーに対するチタン金属の重量に換算した数値)を加え、150～210℃で2.5時間エステル交換反応を行った。得られたエステル交換反応生成物を重合缶に移送し、テトラブチルチタネートを40ppm添加した後、分子量1100のPTMGを15重量%添加して減圧を開始し、最終的に4hPaの減圧下、210～245℃の温度で2時間熔融重合して変性PBTを得た。次に、得られた変性PBTとPET(相対粘度1.38)を15:85(重量比)の割合でチップ混合したものを、コートハンガータイプのTダイを具備した90mmφ押出機を使用して押出回転数42rpm、押出温度270℃、平均滞留時間5分の条件で熔融押出し、20℃に温調されたキャストロールにピンギングワイヤーに7kVの印加電圧をかけて密着急冷し、厚さ210μmの未延伸フィルムを得た。得られた未延伸フィルムをロール縦延伸機で温度90℃で3.8倍、テンター横延伸機で

温度120℃で4.6倍に延伸した後、横方向の弛緩率を5%として、230℃で熱処理を施し、室温まで徐冷し、厚さ12μmの二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。未延伸フィルムのDSC測定結果および二軸延伸ポリエステルフィルムの引裂直線性の評価結果を表1に示した。

#### 【0024】実施例2～3、比較例1～4

変性PBTの組成、変性PBTとPETの配合割合を表1のように変更した以外は、実施例1と同様にして二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。DSCおよび引裂直線性の評価結果を表1に示した。

#### 【0025】実施例4～5、比較例5～6

押出機の回転数、押出温度、滞留時間を表1のように変化した以外は、実施例1と同様に二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。DSCおよび引裂直線性の評価結果を表1に示した。

#### 【0026】実施例6～7、比較例7

変性PBTとPETの配合割合、押出機の回転数、押出温度、滞留時間を表1のように変更した以外は、実施例1と同様に二軸延伸ポリエステルフィルムを得た。DSCおよび引裂直線性の評価結果を表1に示した。

#### 【0027】

#### 【表1】

		変性PBT		配合割合		未延伸フィルムの押出製膜条件			X <sup>2</sup> /200	X <sup>2</sup> /40	ΔHc	引裂直線性
		PTMG	PBT	変性PBT	PBT	押出機回転数rpm	押出温度℃	滞留時間分				
実施例	1	15	85	15	85	50	270	5	1.1	5.5	2.1	○
	2	5	95	10	90	"	"	"	0.5	2.5	1.1	○
	3	20	80	25	75	"	"	"	3.1	15.5	8.5	○
	4	15	85	15	85	"	262	"	1.1	5.5	3.0	○
	5	"	"	"	"	83	270	3	1.1	5.5	3.5	○
	6	"	"	20	80	"	"	"	2.0	10.0	5.7	○
	7	"	"	10	90	35	"	7	0.5	2.5	0.8	○
比較例	1	"	"	3	97	50	"	5	0.1	0.3	0.1	△
	2	"	"	35	65	"	"	"	6.1	30.5	13.0	×
	3	3	97	15	85	"	"	"	1.1	5.5	2.3	×
	4	25	75	"	"	"	"	"	1.1	5.5	2.4	×
	5	15	85	"	"	"	290	"	1.1	5.5	0.6	×
	6	"	"	"	"	25	280	10	1.1	5.5	0.7	×
	7	"	"	10	90	20	25	6	0.5	2.5	2.6	×

#### 【0028】

【発明の効果】本発明によれば、フィルムの少なくとも長手方向の引裂直線性に優れ、かつ、優れた強度、耐熱性、寸法安定性を有し、菓子、漬物、味噌、スープ、ジ

ャム、冷凍、冷蔵、レトルトパウチなどの食品をはじめ、医薬品、日用品、コスメティックスなどの包装材料として有用な易引裂性ポリエステルフィルムが提供される。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

(参考)

B 2 9 L 7:00

Fターム(参考) 3E086 AC16 AD01 BA04 BA15 BB41  
BB51 BB68 BB74 BB85 BB90  
CA03 CA06 CA07  
4F071 AA45 AA46 AAS1 AF06 AH04  
EA01 BB06 BB08 BC01  
4F210 AA24K AA25 QA02 QA03  
QC06 QD16 QG01 QG18 QW12  
4J002 CF061 CF072 GG02